

Pemanfaatan Lempung Berpilar Untuk Pengelolaan Limbah Radioaktif

¹Thamzil Las*, ²Husen Zamroni

¹Program Studi Kimia FST UIN Syarif Hidayatullah Jakarta

²Pusat Pengembangan Pengelolaan Limbah Radioaktif, BATAN, Puspiptek, Serpong
thamzil@batan.go.id

Abstrak

Pemanfaatan Lempung Berpilar Untuk Pengelolaan Limbah Radioaktif. Lempung berpilar (pillared clay) dapat digunakan tidak hanya untuk material *backfill* (bahan pengisi) dalam suatu sistem penyimpanan limbah radioaktif, tetapi juga sangat diperlukan untuk bahan sorben dalam pengolahan limbah radioaktif aktivitas rendah dan sedang. Lempung berpilar dibuat dari bahan bentonit alam yang direaksikan dengan $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$. Identifikasi lempung berpilar diukur dengan spektrometer X-Ray Fluorescence dan kemampuan penyerapan oleh lempung berpilar terhadap radionuklida Cs-137 pada konsentrasi CsCl 0,01M, 0,05M dan 0,1 M menghasilkan nilai K_d (koefisien distribusi) berturut-turut sebesar 1619 ml/g, 1133 ml/g dan 800 ml/g. Lempung berpilar mampu menyerap radionuklida Cs-137 dalam limbah aktivitas rendah. Dan bila digunakan sebagai material *backfill*, tidak hanya mampu menahan aliran air tanah, tapi juga mampu menahan lepasnya radionuklida ke lingkungan sehingga terjamin keselamatan penyimpanan limbah radioaktif

Kata kunci : Limbah radioaktif, Bentonit, Koefisien distribusi, Cesium-137

Abstract

The utilization of Pillared Interlayer Clays (PILC) for the Radioactive Wastes Treatment. PILC is used not only as backfill material in radioactive waste disposal system, but also as an important inorganic-sorbent for treatment of low-and intermediate-level radioactive wastes. PILC is made from natural bentonite and treated by $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$. The identification of PILC was measured by X-Ray Fluorescence Spectrometry and the ion-exchange capacity against Cs-137 in simulated waste containing Cs-137 in carries of 0,01M, 0,05M and 0,1 M CsCl, resulted in the distribution coefficient, K_d was of 1619 ml/g, 1133 ml/g and 800 ml/g, respectively. These results were showed that the PILC could also be useful for not only blocking the water movement, but also adsorbing of nuclide to protect the radionuclide migration into the environment.

Keywords : Radioactive waste, Bentonite, distribution coefficient, Cesium-137

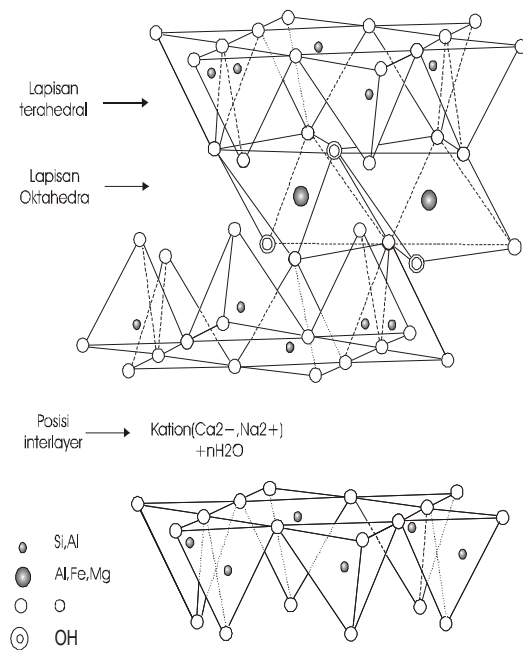
1. PENDAHULUAN

Mineral lempung telah dikenal penggunaannya sejak 25000 tahun yang lalu oleh manusia primitive (1). Pada saat ini masyarakat mengenal penggunaan mineral lempung untuk bahan baku pembuatan keramik, pengeboran minyak, industri logam dan kertas. Mineral lempung juga digunakan sebagai adsorben, menghilangkan warna dan penukar kation dan katalis. Bila dicampur dengan air akan *swelling* berupa pasta yang dapat dibentuk dalam berbagai rupa, bila dipanaskan akan menjadi keras. Salah mineral lempung adalah bentonit

(montmorilonit) yang kejadiannya berasal dari abu gunung api (vulcanic ash) akan membeku dalam berbagai kondisi hidrotermal, sehingga bentonit suatu lokasi dengan warna dan tekstur yang sama mungkin berbeda dalam komposisi kimia dengan bentonit yang diperoleh dari tempat lain yang disebabkan karena kombinasi lempung material yang berupa partikel halus dengan berbagai impuritis. Hal ini telah menyebabkan dikenalnya berbagai jenis bentonit seperti bentonit Wyoming, Amerika, bentonit Suray Inggris dan bentonit Kunipia

Jepang dan bentonit Trenggalek Jawa Timur (6).

Mineral lempung yang banyak diteliti pada penggunaan industri adalah jenis kaolinit ($(Si_4Al_4O_{10})(OH)_8$), bentonit (monmorillonit) dan illit. mempunyai ($(Si_8Al_4O_{20})(OH)_4 \cdot nH_2O$) (3). Struktur kristal lempung adalah dua dimensi lapisan yaitu atom silika (lapisan silika) bentuk tetrahedra dan atom aluminium (lapisan Al) dalam bentuk oktahedra. Tetrahedra silika terikat sebagai $Si_4O_6(OH)_4$ sedangkan oktahedra Al berikatan secara $Al_2(OH)_4$ yang berikatan secara Van der Waals (fisik) membentuk lapisan aluminosilikat karena kondisi terjadinya bentonit, memungkinkan terjadinya substitusi Si oleh Al (bentuk tetrahedra), menyebabkan mineral lempung kekurangan muatan – (negatif) yang dinetralkan oleh logam alkali dan alkali tanah. Ion logam tersebut berada diantara lapisan, sehingga dapat dipertukarkan dengan ion lain menyebabkan bentonit mempunyai sifat penukar ion (Gambar 1)



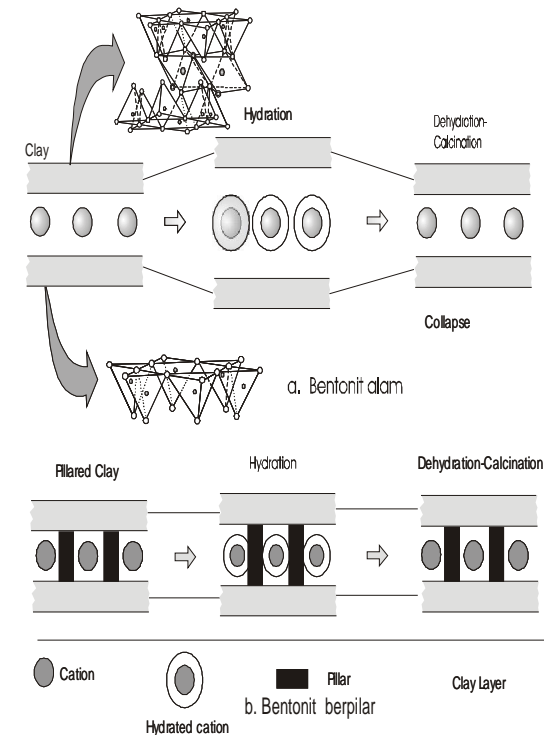
Gambar 1. Kristal struktur montmorillonite

Mengingat bentonit, illit dan smektit mempunyai sifat mengembang maka sering dilakukan pembuatan bentonit berpilar dengan menyangga struktur lapisan dengan atom tertentu seperti senyawa organik atau anorganik seperti Zr, Al, Ti, Ni, Ga dan Ge

(lihat Gambar 2). Rongga antar lapisan silika dan alumina biasanya ditempati oleh molekul air ataupun kation-kation yang dapat dipertukarkan yang sangat penting untuk pengolahan radioaktif. Dengan demikian bentonit tidak hanya dimanfaatkan sebagai bahan adsorbent dan sebagai bahan *backfill* pada penyimpanan limbah tanah dangkal maupun penyimpanan tanah dalam.

PILC ini merupakan lempung yang mempunyai porositas yang permanen (tidak *swelling*), kestabilan termal yang tinggi dan, luas permukaannya akan menjadi lebih besar sekitar 100 sampai 250 m^2 /gram dan mempunyai poros yang *uniform*. Sifat-sifat yang demikian menyebabkan PILC sangat menarik digunakan dalam berbagai proses kimia pada suhu tinggi > 650 °C (4).

Untuk membuat pilar biasanya digunakan poli kation dalam bentuk metal-organik seperti hydroxy-Al, hydroxy-Zr, hydroxy-Ti, hydroxy-Ni dan hydroxy-Fe (diutamakan yang bermuatan positif). Pada penelitian ini digunakan lempung asal Trenggalek (Jawa Timur) dipilarisasi dengan poli kation hydroxy-Zr yang dipelajari pada penyerapan Cs-137 dari limbah radioaktif.



Gambar 2. Efek swelling pada bentonit dan bentonit berpilar (5)

2. METODE PENELITIAN

Bahan dan alat

Bentonit yang digunakan jenis Ca bentonit dengan ukuran 100 mesh yang sudah dicuci dengan bersih dan dikeringkan pada suhu 90°C. Zirkonium yang digunakan dari Merck dalam bentuk zirconyl chloride padat ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$). Pengukuran komposisi kimia bentonit dilakukan dengan X-Ray Fluorescence Spectrometer (XRF) Merk. Pengukuran kemampuan pertukaran ion Cs-137 dicacah dengan Liquid Scintillation Analyzer (LSA) Merk Perkin Elmer.

Pembuatan Bentonit Berpilar

Bentonit berpilar dipersiapkan dengan melakukan penambahan larutan polioksokation dari zirconyl chloride ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$) dalam air pada suhu 90°C selama 24 jam. Sebanyak 33 gram bentonit yang sudah dikeringkan dilarutkan dalam air 1000 ml yang sudah mengandung zirconyl chloride ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$) masing-masing sebanyak 0,01 M, 0,05 M, 0,1M. Campuran distirer selama 24 jam dan dipanaskan pada suhu 90°C. Setelah 24 jam campuran di saring dan dicuci sampai bebas klor dengan air demin, untuk menentukan sudah bebas klor atau belum digunakan 0,1 M $AgNO_3$. Bentonit yang sudah terpilar dikeringkan dalam oven pada suhu 110°C. (Gambar 3) [2]. Bentonit dan bentonit yang sudah terpilar selanjutnya dikarakterisasi dengan XRF spektrometer. Bentonit awal dan bentonit berpilar dibuat dalam bentuk matrik gelas dengan cara ditambahkan lithium tetra borate kemudian dipanaskan pada suhu sekitar 1250°C sampai terbentuk gelas.

Penentuan Penyerapan Cs-137

Koefisien Distribusi (K_d) ditentukan dengan mengontakkan 0,1 gram bentonit dengan 20 ml larutan yang mengandung Cs-137 dalam botol polietilen selama (3 hari untuk mencapai reaksi kesetimbangan) dengan menggunakan mineral roller. Penelitian ini juga dilakukan pada berbagai pH dari 1 - 9 dengan penambahan HCl 0,1 N Analisis serapan cesium-137 untuk 10 ml larutan contoh di cacah dengan LSA. dengan menggunakan alat *Liquid Scintillation*

Analysers (LSA). Koefisien distribusi ditentukan dengan rumus:

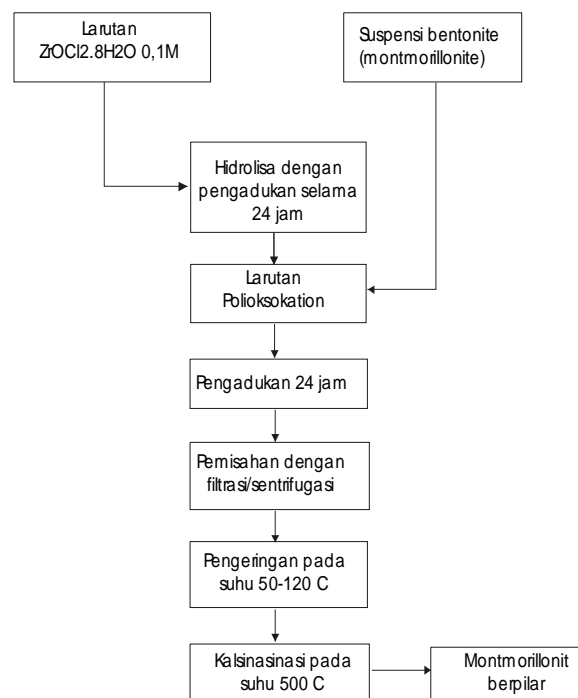
$$K_d = \frac{(A_o - A_t)}{A_t} \times \frac{V}{W} \quad (1)$$

A_o = Aktivitas radioaktiv awal
 A_t = Aktivitas setelah kesetimbangan
 V = Volume larutan awal
 W = Berat bentonit

Sedangkan untuk menentukan efisiensi penyerapan ditentukan dengan rumus:

$$E_f = \frac{A_o - A_t}{A_o} \times 100\% \quad (2)$$

E_f = Efisiensi penyerapan
 A_o = Aktivitas radioaktiv awal
 A_t = Aktivitas setelah kesetimbangan

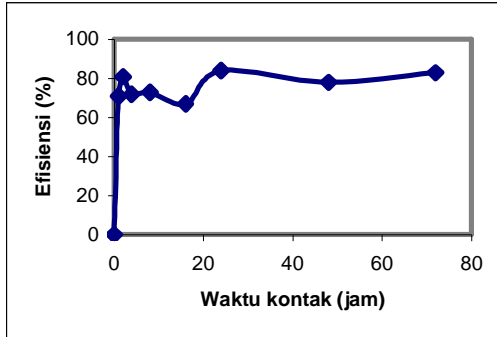


Gambar 3. Diagram alir preparasi montmorillonit berpilar

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

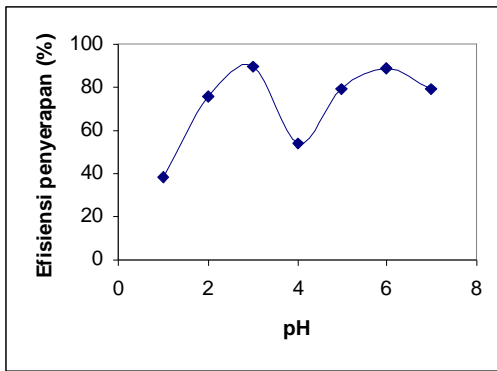
Hasil analisa penyerapan Cesium-137 oleh bentonit berpilar ditunjukkan dalam Gambar 4, penyerapan dapat mencapai kesetimbangan setelah waktu kontak 1-2 jam

dengan efisiensi penyerapan 80 % . Ini menunjukkan reaksi pertukaran ion Cs-137 cukup berlangsung cepat untuk mencapai kesetimbangan dengan efisiensi penyerapan cukup tinggi..



Gambar 4. Hubungan waktu kontak dengan efisiensi penyerapan

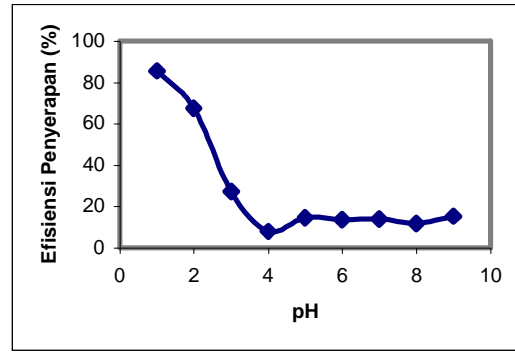
Efisiensi maksimum penyerapan pada bentonite berpilar 0,01M $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ dicapai pada pH 3 dengan efisiensi sebesar 89 % (Gambar 5) dengan nilai Kd sebesar 1619 ml/g.



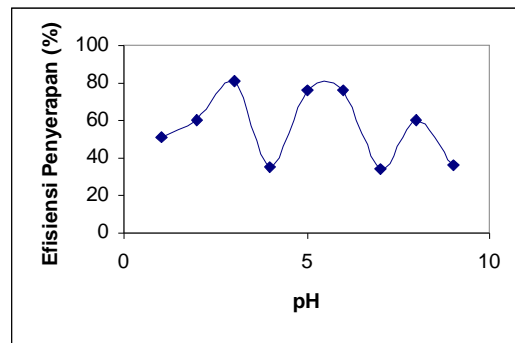
Gambar 5. Hubungan pH dengan efisiensi penyerapan bentonit berpilar 0,01 M

Pada 0,05 M $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ efisiensi maksimum penyerapan Cs-137 dicapai pada pH 1 s sebesar 85 % (Gambar 6) dan nilai KD adalah 1133 ml/g.

Sedangkan untuk konsentrasi 0,1 M $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$, efisiensi maksimum penyerapan dicapai pada pH 3 yaitu sebesar 80 % (Gambar 7) dan Kd sebesar 800 ml/g.



Gambar 6. Hubungan pH dengan efisiensi penyerapan bentonit berpilar 0,05 M



Gambar 7. Hubungan pH dengan efisiensi penyerapan bentonit berpilar 0,1 M

Bentonit berpilar dari 0,01 M, 0,05 M dan 0,1 M zircon secara umum memberikan hasil yang cukup baik dalam penyerapan Cs-137 meskipun lebih rendah dari bentonit murni karena sebagian ruangan bentonit terisi oleh zircon. Semakin tinggi konsentrasi zircon pada pembuatan PILC, menyebabkan pula penurunan serapan Cs-137 oleh PILC.

Tabel 1. Komposisi kimia Bentonit Murni (BM) dan PILC

Oksida	% berat BM	% berat PILC	Berat Mole	Mole/ Al ₂ O BM	Mole/ Al ₂ O PILC
SiO ₂	57,50	46,17	60,09	6,07	6,34
Al ₂ O ₃	15,95	12,32	101,96	1	1
Fe ₂ O ₃	9,35	7,01	61,98	0,37	0,33
Na ₂ O	2,16	0,55	94,20	0,19	0,07
K ₂ O	0,30	0,27	56,08	0,02	0,02
CaO	1,66	0,27	40,31	0,18	0,04
MgO	2,33	1,48	159,70	0,36	0,30
MnO ₂	0,07	0,04	86,94	0,01	0,003
ZrO	-	11,97	107,28	-	0,92
SiO ₂ / Al ₂ O ₃	3,6	3,7			

Kenaikan jumlah kandungan zircon di dalam bentonit tidak mempengaruhi perbandingan Si/Al dalam bentonit seperti terlihat dari analisa komposisi kimia bentonit dengan XRF (Tabel 1). Pada bentonit murni perbandingan $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ adalah 3.6 atau $\text{Si}/\text{Al} = 2,62$ sedangkan dalam bentonit berpilar perbandingan $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ adalah 3.7 ($\text{Si}/\text{Al} = 2,84$ (1)). Formula oksida bentonit murni adalah $0,19 \text{Na}_2\text{O}$, $0,02 \text{K}_2\text{O}$, $0,18 \text{CaO}$, $0,36 \text{MgO}$, $0,005 \text{MnO}$, $0,37 \text{Fe}_2\text{O}_3$, Al_2O_3 , $6,07 \text{SiO}_2$ sedangkan PILC adalah $0,19 \text{Na}_2\text{O}$, $0,02 \text{K}_2\text{O}$, $0,18 \text{CaO}$, $0,36 \text{MgO}$, $0,005 \text{MnO}$, $0,37 \text{Fe}_2\text{O}_3$, Al_2O_3 , $6,07 \text{SiO}_2$.

Perbandingan Si/Al ini menunjukkan bahwa struktur bentonit tidak mengalami perubahan setelah dipilarisasi dengan Zr, namun kandungannya Ca^{2+} dan Na^+ menurun jumlahnya baik untuk lempung Trenggalek dan Zr-PILC. Penurunan kandungan kation-kation (Ca^{2+} , Na^+) yang ada dalam layer telah tergantikan dengan zircon yang membentuk pilar diantara dua lapisan Si dan Al. sehingga mempunyai poros yang tetap.

4. KESIMPULAN

Bentonit berpilar mempunyai kelebihan yaitu porosnya relatif seragam dan tidak mengalami *swelling*. Nilai koefisien distribusi bentonit berpilar cukup tinggi, berturut-turut 1614 ml/g, 1133 ml/g dan 800 ml/g. Makin tinggi nilai Kd maka makin baik kualitas Zr-PILC untuk digunakan untuk pengolahan limbah radioaktif mengandung Cs-137. Sebanyak 1 gram zeolit dapat mengolah limbah sekitar 1 liter limbah aktivitas rendah mengandung Cs-137.

Mengingat banyaknya potensi PILC kiranya penelitian ini dapat dilanjutkan tidak hanya untuk zat radioaktif tetapi juga untuk logam berat dari limbah industri serta sifat kimia-fisika lainnya misalnya kestabilan termal, radiasi dan sifat *swelling* bentonit..

DAFTAR PUSTAKA

1. A. Dyer, N.U. James and N.J. Terrill, *Uptake of Cesium and Strontium Radioisotopes onto Pillared Clays* (1998)
2. A. Dyer, T. Gallardo and C.W. Roberts, *Preparation and Properties of Clays*

Pillared with Zirconium and Their Use in HPLC Separation (1989)

3. J.T. KLOPOGGE, *Synthesis of Smectite and Porous Pillared Clay Catalyst* (1997)
4. H.Y. Zhu, E.F. Vansant and J.A. Xia and G.Q.Lu, *Porosity and Thermal Stability of Montmorillonite Pillared with Mixed oxides of Lanthanum, Calcium and Aluminium* (1996)
5. E.F. Vansant, *Chemical Modification of oxide Surfaces*, 1999
6. Buku Laporan Tahunan Pertambangan Departemen Pertambangan dan Energi, Tahun 1991-1995, diolah oleh PPTM, agustus 2000.
7. Thamzil Las, *Use of Natural Zeolites for Nuclear Waste Treatment*, 1989.